

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-351642

(43)Date of publication of application : 21.12.2001

(51)Int.Cl.

H01M 8/02

(21)Application number : 2000-172583

(71)Applicant : RIKEN CORP

(22)Date of filing : 08.06.2000

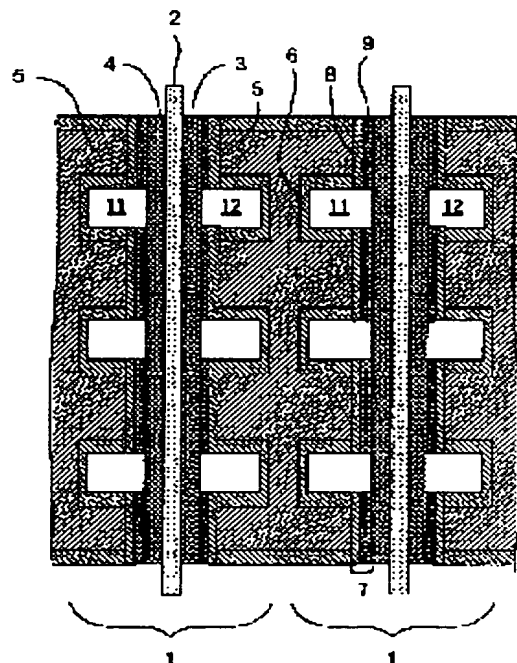
(72)Inventor : KO KORETOMO
KUNIMOTO AKIRA

(54) SEPARATOR FOR FUEL CELL

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a metal separator for fuel cell that has excellent corrosion resistance.

SOLUTION: The separator for fuel cell is made of metal material and comprises a contacting face with the electrode or the current collector and a reaction gas ventilation groove, and is formed of a conductive laminate film on the contacting face composed of plural layers including a first layer contacting with the metal material and the uppermost layer contacting with the electrode or the current collector. The above plural layers are respectively independently made of metal or its alloy, oxide or nitride, conductive carbide or carbon different from the metal material.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号
特開2001-351642
(P2001-351642A)

(43) 公開日 平成13年12月21日 (2001. 12. 21)

(51) Int.Cl.⁷

H 0 1 M 8/02

識別記号

F I

H 0 1 M 8/02

テームト* (参考)

B 5 H 0 2 6

審査請求 未請求 請求項の数 7 O L (全 8 頁)

(21) 出願番号 特願2000-172583(P2000-172583)

(22) 出願日 平成12年6月8日 (2000. 6. 8)

(71) 出願人 000139023

株式会社リケン

東京都千代田区九段北1丁目13番5号

(72) 発明者 高 云智

埼玉県熊谷市末広四丁目14番1号 株式会
社リケン熊谷事業所内

(72) 発明者 国元 晃

埼玉県熊谷市末広四丁目14番1号 株式会
社リケン熊谷事業所内

(74) 代理人 100080012

弁理士 高石 橋馬

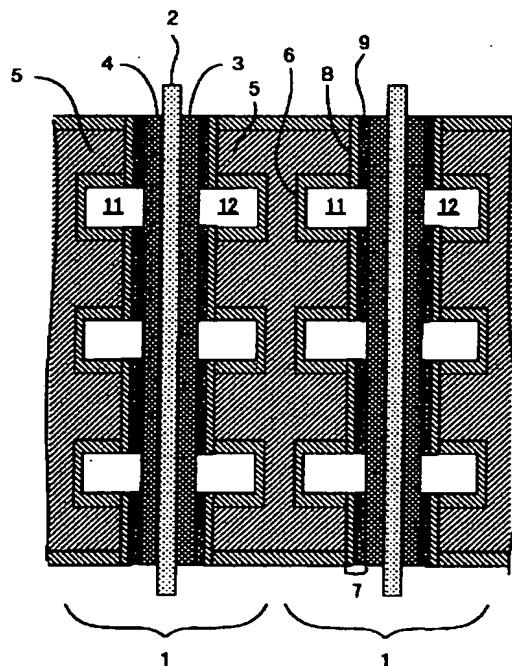
Fターム(参考) 5H026 AA06 CC03 CX04 EE02 EE05
EE08 EE11 EE12 HH03

(54) 【発明の名称】 燃料電池用セバレータ

(57) 【要約】

【課題】 優れた耐食性を有する金属製燃料電池用セバレータを提供する。

【解決手段】 金属母材からなり、電極又は集電体との接触面及び反応ガス通気溝を有し、該接触面上には金属母材に接する第一層と電極又は集電体に接する最上層とを含む複数の層により構成される導電性積層被膜が形成されている燃料電池用セバレータ。上記複数の層はそれぞれ独立に金属母材と異なる金属又はその合金、酸化物若しくは窒化物、導電性炭化物、或いはカーボンからなる。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 金属母材からなり、電極又は集電体との接触面及び反応ガス通気溝を有する燃料電池用セバレータにおいて、前記接触面上には前記金属母材に接する第一層と電極又は集電体に接する最上層とを含む複数の層により構成される導電性積層被膜が形成されており、前記複数の層はそれぞれ独立に前記金属母材と異なる金属又はその合金、酸化物若しくは窒化物、導電性炭化物、或いはカーボンからなることを特徴とする燃料電池用セバレータ。

【請求項2】 請求項1に記載の燃料電池用セバレータにおいて、前記金属母材がアルミニウム又はアルミニウム合金からなる金属板であり、前記反応ガス通気溝の表面にはアルマイト被膜が形成されていることを特徴とする燃料電池用セバレータ。

【請求項3】 請求項1又は2に記載の燃料電池用セバレータにおいて、前記第一層がPd、Ru、Ag、Zr、Cr、B、Ni、Ti及びSnからなる群から選ばれる金属又はその合金、酸化物若しくは窒化物、導電性炭化物、或いはカーボンからなることを特徴とする燃料電池用セバレータ。

【請求項4】 請求項1～3のいずれかに記載の燃料電池用セバレータにおいて、前記最上層がAu、Pt、Ir、Pd、Ru及びAgからなる群から選ばれる金属若しくはその合金、導電性炭化物、又はカーボンからなることを特徴とする燃料電池用セバレータ。

【請求項5】 請求項1～4のいずれかに記載の燃料電池用セバレータにおいて、前記第一層の厚みが0.1～10 μm であることを特徴とする燃料電池用セバレータ。

【請求項6】 請求項1～5のいずれかに記載の燃料電池用セバレータにおいて、前記最上層の厚みが0.01～2 μm であることを特徴とする燃料電池用セバレータ。

【請求項7】 請求項1～6のいずれかに記載の燃料電池用セバレータにおいて、前記第一層が前記最上層を構成する組成を含む合金又は混合物からなることを特徴とする燃料電池用セバレータ。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は燃料電池用セバレータに関し、特に自動車の動力用車載燃料電池に使用できるセバレータに関する。

【0002】

【従来の技術】燃料電池は燃料から電気へのエネルギー変換効率が高く有害物質を排出しないため、次世代の発電装置として注目されている。特に150℃以下の温度領域で作動する高分子イオン交換膜型燃料電池は盛んに研究されており、数年後の実用化が見込まれている。この燃料電池は比較的低い温度で作動でき、発電の出力密度が高く、小型化が可能であるため家庭用や車載用の燃料電池として適している。

【0003】高分子イオン交換膜型燃料電池は通常、固体電解質膜の両面に燃料電極及び酸素電極（空気電極）を固定して単電池（セル）を形成し、これを燃料ガスと空気を供給する通気溝を設けた板状セバレータを介して積層することにより構成される。固体電解質膜としてはスルホン酸基を有するフッ素樹脂系イオン交換膜等が用いられ、電極はカーボンブラックに撥水材PTFEと貴金属微粒子触媒を分散したもの等により形成する。水素-酸素燃料電池が作動する際には、水素ガスが酸化されて生じたプロトンが電解質中に進入し水分子と結合して H_2O となり、正極側に移動する。正極側では通気溝から導入された酸素が水素の酸化反応により発生する電子を得て、電解質中のプロトンと結合し水となる。これらの反応過程を継続することにより電気エネルギーを連続的に取り出すことができる。この単電池の理論起電力は1.2Vであるが、実際には電極の分極、反応ガスのクロスオーバー（燃料ガスが電解質を透過して空気電極に漏れる現象）、電極及び集電体の接触抵抗による電圧降下等の原因で、出力電圧は0.6～0.8V程度である。従って、実用的な出力を得るためには、セバレータを介して数十の単電池をスタックし直列的に接続する必要がある。

【0004】前述の発電原理から解るように、電解質中には H^+ が多く存在するので、水又は水蒸気が多量に存在する電解質内部と電極の近傍では強酸性となる。また正極側で酸素が H^+ と結合して水を生成するが、電池の作動状態によっては過酸化水素が生成する場合がある。セバレータはこのような環境下に組み込まれるので、電気伝導性及び気密性に加えて、高い化学的・電気化学的安定性（耐食性）を有することが要求される。

【0005】従来の燃料電池用セバレータの多くは黒鉛板を機械加工したものである。黒鉛セバレータは電気抵抗が低く耐食性が高い反面、機械強度が低く加工コストが高い。車載用燃料電池に用いるセバレータは高い機械強度を有し低コストで加工可能であることが要求されるので、現状の黒鉛セバレータをそのまま車載用燃料電池に適用することは困難である。近年、黒鉛粉末を樹脂と混合して射出成形し、更に高温焼成することによりセバレータを製造する方法が検討されているが、得られる焼成体の密度が低いため気密性が悪いという問題がある。このセバレータを樹脂で浸漬し炭化再焼成することによって密度を高めることは可能であるが、製造工程が煩雑になる。加えて、このように製造されたセバレータの接触電気抵抗は従来の黒鉛セバレータより数倍大きく、電池の出力電圧低下が避けられない。

【0006】黒鉛セバレータ以外に、金属からなるセバレータも検討されている。金属セバレータはバルク電気抵抗が低く、高い気密性及び機械強度を有し、加工コストの低減が容易である。また、セバレータの厚さを薄くできるので小型化が容易である。更に、アルミニウムのような低比重金属材料を用いると燃料電池を一層軽量化

することができる。しかしながら、金属セバレータにおいては、基材の金属そのものが腐食しやすいという問題がある。特にアルミニウム基材は非常に腐食速度が大きいたことが報告されている(R. L. Rorup, et al., Mater. Res. Soc. Symp. Proc., 393 (1995)等)。また、腐食により生成した金属イオンが電解質膜に進入すると、膜のイオン伝導性が低下し電池の性能に影響を与える恐れがある。

【0007】特開平11-162478号は、貴金属を金属セバレータの全表面にメッキすることにより、耐食性を改善する手法を開示している。この手法はセバレータ性能に関しては問題が無いが、高コスト化を招き実用的ではない。コスト低減のためには貴金属メッキ層を薄くする必要があるが、湿式メッキの際に層厚を薄くすると微細なピンホールが発生し腐食の原因となり、また乾式メッキ(蒸着、スパッタ等)では生産効率が悪く、被膜の均一性も悪化してしまう。

【0008】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、優れた耐食性を有する金属製燃料電池用セバレータを提供することである。

【0009】

【課題を解決するための手段】上記課題に鑑み鋭意研究の結果、本発明者らは、少なくとも電極又は集電体との接触面上に複数層からなる導電性積層被膜を設けた金属製燃料電池用セバレータは優れた耐食性を示すことを発見し、本発明に想到した。

【0010】すなわち、本発明の燃料電池用セバレータは金属母材からなり、電極又は集電体との接触面及び反応ガス通気溝を有し、該接触面上には金属母材に接する第一層と電極又は集電体に接する最上層とを含む複数の層により構成される導電性積層被膜が形成されており、その複数の層はそれぞれ独立に金属母材と異なる金属又はその合金、酸化物若しくは窒化物、導電性炭化物、或いはカーボンからなることを特徴とする。

【0011】軽量化の観点から、金属母材としてアルミニウム又はアルミニウム合金からなる金属板を用いるのが好ましい。この場合、反応ガス通気溝の表面にはアルマイト被膜を形成するのが好ましい。

【0012】上記第一層はPd, Ru, Ag, Zr, Cr, B, Ni, Ti及びSnからなる群から選ばれる金属又はその合金、酸化物若しくは窒化物、導電性炭化物、或いはカーボンからなるのが好ましい。また、上記最上層はAu, Pt, Ir, Pd, Ru及びAgからなる群から選ばれる金属若しくはその合金、導電性炭化物、又はカーボンからなるのが好ましい。第一層の厚みは0.1~10 μ mであるのが好ましく、上記最上層の厚みは0.01~2 μ mであるのが好ましい。

【0013】第一層は最上層を構成する組成を含む合金又は混合物からなるのが好ましい。

【0014】

【発明の実施の形態】以下、本発明の燃料電池用セバレータを図面を用いて詳述するが、本発明はそれらに限定されず本発明の趣旨を変更しない限り種々の変更を加えることができる。

【0015】図1は本発明の一実施例による燃料電池用セバレータを含む燃料電池の一例を示す部分概略図である。図1の燃料電池は、固体電解質2とその両側に設けられたアノード3及びカソード4からなる単電池1を、セバレータ5を介して積層して構成されている。積層の両端は外部回路(図示せず)に接続する。本発明の燃料電池用セバレータは金属母材からなり、電極又は集電体との接触面及び反応ガス通気溝を有する。接触面上には複数の層により構成される導電性積層被膜を形成する。本発明のセバレータは様々な燃料電池に使用でき、特に自動車の動力用車載燃料電池に好適に利用できる。

【0016】[A]金属母材

本発明では、セバレータ母材として高い電気伝導性及び耐震性能を有する金属を用いるのが好ましい。また、自動車の車載燃料電池として利用する場合はセバレータの軽量化が必要となるため、母材としてアルミニウム、チタニウム、マグネシウム等の軽金属又はその合金を用いるのが好ましく、アルミニウム又はアルミニウム合金を用いるのがより好ましい。金属母材の厚さは特に限定されないが、車載燃料電池に用いる場合は0.5~3mmとするのが好ましい。

【0017】[B]電極又は集電体との接触面

本発明のセバレータは電極又は集電体との接触面を有する。該接触面の形状は、燃料電池の電極又は一次集電体のカーボンペーパー、カーボクロス等と接触するために適した形状であればよく、図面により限定されない。

【0018】本発明のセバレータにおいては、図1に示すように電極又は集電体との接触面上に、金属母材に接する第一層8と電極又は集電体に接する最上層9とを含む複数の層により構成される導電性積層被膜7を形成する。図2に示すように、第一層8と最上層9の間に1層以上の中間層10を設置してもよい。導電性積層被膜はセバレータ母材の全表面に形成してもよく、電極接触面のみ形成してもよい。また、例えばセバレータの全表面に第一層を形成し、電極接触面のみ最上層を形成してもよい。中間層を設置して導電性積層被膜を3以上の層により構成する場合は、可能な組み合わせがさらに多くなるが、より一層優れた耐食性が得られる組み合わせを適宜選択すればよい。

【0019】金属材料同士又は導電性材料同士を接触させると電気抵抗が生じる。この電気抵抗は各材料のバルク抵抗と接触界面の接触抵抗を含む。殆どの導電性材料においては、バルク電気抵抗はあまり高くなく接触抵抗が高い。このことは導電性材料の表面に酸化層が常に存在すること、異なる材料の表面エネルギーによって電位

障壁が生成すること、表面組成がバルクと異なること等に由来する。本発明では、接触抵抗の高い耐食性に優れた材料を上記第一層又は中間層として使用して導電性積層被膜を形成できるため、様々な材料の組み合わせから適宜選択でき、耐食性向上と接触抵抗低減を両立することができる。

【0020】前述のように、金属母材に白金族貴金属被膜をメッキすれば耐食性を改善できることが知られている。この方法においてコストを抑えるためには白金族貴金属被膜を薄くする必要があるが、一般に貴金属メッキ層を薄くするとピンホールの発生等によって十分な耐食性が得られない。即ち、従来の貴金属のみの被膜を形成する場合、母材表面が完全に被覆されれば貴金属の化学安定性により母材の腐食は抑えられるが、被膜にピンホールや欠陥等があると、母材と貴金属被膜の電極電位差が大きく貴金属の触媒活性が高いために、還元反応が非常に進行しやすくセバレータの腐食が避けられない。本発明では、金属母材と貴金属被膜（上記最上層9）の間に中間被膜（上記第一層8及び中間層10）を形成することによって、ピンホール又は表面欠陥による母材の腐食を大幅に低減することが可能である。すなわち、金属母材と貴金属被膜の間に異なる材料の被膜を形成することによって、金属母材と貴金属層の電気化学的電極電位差が緩和され腐食速度が低減される。つまり本発明では、単に物理的に隔離することにより腐食を抑制するのみならず、電気化学的に耐食性を向上させることができる。

【0021】導電性積層被膜を構成する上記複数の層はそれぞれ独立に、金属母材と異なる金属又はその合金、酸化物若しくは窒化物、導電性炭化物、或いはカーボンからなる。また、これらの材料を含む混合物を使用してもよい。導電性炭化物としては炭化ケイ素、炭化ニオブ、炭化タングステン等が使用可能である。炭化物被膜は接触抵抗が小さく良好な耐食性及び耐酸化性を有するので、セバレータの保護膜としても作用する。カーボンとしてはCVDによる黒鉛膜、DLC膜（ダイヤモンドライクカーボン膜）等が使用できる。また黒鉛粉に撥水剤を添加したものを塗布してもよい。電極がカーボンブラックに微量のPtを添加したもの等からなる場合、カーボン被膜を用いると接触なじみが良い。各層の形成方法は特に制限されず、湿式メッキ、乾式メッキ、スパッタリング、CVD等の方法が適用できる。

【0022】上記第一層は導電性を有する耐食性に優れた材料により構成するのが好ましい。第一層は電極との接触抵抗が高くてよいので、導電性と耐食性さえあれば貴金属材料を用いる必要は無い。第一層はPd、Ru、Ag、Zr、Cr、B、Ni、Ti及びSnからなる群から選ばれる金属又はその合金、酸化物若しくは窒化物、導電性炭化物、或いはカーボンからなるのが好ましい。このような材料を用いることにより被膜コストを大幅に低減できる。

【0023】第一層は緻密であるのが好ましく、その多孔度は5%以下とするのが好ましく、2%以下とするのがより好ましい。第一層の厚みは好ましくは0.1~20 μ mより好ましくは0.1~10 μ m、特に好ましくは0.5~10 μ mとすると、一層優れた耐食性が得られる。第一層の厚みが0.1 μ mより小さいと金属母材が腐食しやすく、20 μ mより大きいと膜が剥離しやすい。

【0024】上記最上層は電気伝導性と耐食性に優れ、電極との接触抵抗が低い材料により構成するのが好ましい。最上層はAu、Pt、Ir、Pd、Ru及びAgからなる群から選ばれる金属若しくはその合金、導電性炭化物、又はカーボンからなるのが好ましい。

【0025】最上層の多孔度は特に限定されないが、膜強度の観点から10%以下とするのが好ましく、5%以下とするのがより好ましい。最上層の厚みは0.01~5 μ mとするのが好ましく、0.01~2 μ mとするのがより好ましく、0.05~2 μ mとするのが特に好ましい。最上層の厚みが0.01 μ mより小さいと電極との接触抵抗が上昇し良好な発電性能が得られ難い。一方、5 μ mより大きいと被膜コストが大きく、膜が剥離しやすい。

【0026】中間層は上記第一層及び最上層との接合性が良好な層とするのが好ましい。中間層の膜厚に関しては特に制限はないが、導電性積層被膜の総膜厚は0.5~20 μ mとするのが好ましい。総膜厚が0.5 μ mより小さいと金属母材の耐食性が不十分となり、20 μ mより大きいと被膜が剥離しやすくなるため好ましくない。

【0027】導電性被膜の層間の密着性（接合性）の観点から、第一層は最上層を構成する組成を含む合金又は混合物からなるのが好ましい。例えば図3に示すように、最上層9がAからなる場合は第一層8の組成をAの合金又はAを含む混合物（A-X）とするのが好ましい。このような導電性積層被膜は、例えば2種以上の被膜組成を含む浴液中に金属母材を浸漬し、電解電圧を調整しながら湿式電解メッキすることで連続的に作成できる。またドライプロセスとしては、ターゲット自体を合金ターゲットに途中で切り替えてスパッタする方法等が適用できる。

【0028】[C]反応ガス通気溝

図1に示すように、本発明の燃料電池用セバレータ5は反応ガス通気溝11及び12を有する。通常、反応ガス通気溝12とアノード3により形成される通路には燃料ガスが供給され、反応ガス通気溝11とカソード4により形成される通路には酸化剤ガスが供給される。反応ガス通気溝は機械加工、プレス、精密鑄造、化学研磨（エッチング）、電解研磨等の方法により所定パターンに形成すればよい。反応ガス通気溝の形状は図中ではコ字型としたが、電極に接する部分に反応ガス用通路が形成できる形状であれば特に限定されず、反応ガス通気抵抗が小さく、且つ発電効率が高くなるように設定するのが好ましい。通常、各反応ガス通気溝の深さは0.2~2mmとする

のが好ましく、幅は0.5～5mmとするのが好ましい。

【0029】図1に示すように、セバレータの耐食性及び耐酸化性を向上させるために、反応ガス通気溝11及び12の表面には通気溝保護膜6を形成するのが好ましい。通気溝保護膜として上記第一層をセバレータの全面に形成してもよい。通気溝保護膜は金属母材を酸化したり、耐食性物質を湿式メッキ法、溶射法、スパッタリング法、イオンプレーティング法、CVD法等により積層して形成できる。通気溝保護膜の膜厚は0.5～20μmとするのが好ましい。

【0030】金属母材としてアルミニウム又はアルミニウム合金からなる金属板を用いる場合には、通気溝保護膜として化学的及び物理的に安定なアルマイト被膜を形成するのが好ましい。アルマイト被膜は陽極酸化法等により形成でき、例えば電解液としてシュウ酸、硫酸、クロム酸等の水溶液を用いて電解することにより、γ-アルミナ被膜を基材表面に形成すればよい。

【0031】

【実施例】以下、実施例により本発明をより詳細に説明するが、本発明はそれらに限定されるものではない。

【0032】実施例1

表1に示す各セバレータ母材(1mm×150mm×150mm)に、プレス加工により深さ1.0mm及び幅3.0mmの反応ガス通気溝を形成した。次にこれを脱脂・洗浄し、前処理等の工程を経た後、表1に示す第一層及び最上層からなる導電性積層被膜をそれぞれ形成した。Niからなる第一層は湿式電気メッキによりセバレータ全表面に形成した。このときメッキ浴液と電解条件を調整することにより、厚*

* 約5μmの鏡面をもつ光沢Niメッキを形成した。第一層の多孔度は約2%であった。反応ガス通気溝内に形成されたNi層は通気溝保護膜として機能する。また、Auからなる最上層も湿式電気メッキにより形成した。Au層の膜厚は約0.1μmであった。

【0033】100重量部のカーボンブラックに15重量部のPtペースト(Pt:90重量%)を添加し、更に15重量部のテフロン(登録商標)粒子(平均粒径:0.2μm)を攪水剤として添加して電極用ペーストを調製した。この電極用ペーストをプロトン伝導性高分子固体電解質膜(Nafion)に塗布し、乾燥した。これをカーボクロスで挟み、更に2枚の上記各セバレータで挟み込んで本発明のセバレータを含む燃料電池(単電池)1a及び1b、並びに比較用の燃料電池1a'～1d'をそれぞれ作製した。セバレータの締め付け圧力は10kg/cm²とした。また、比較のために従来の黒鉛セバレータを用いた燃料電池1e'も同様に作製した。

【0034】得られた燃料電池に対して、アノード側の反応ガス通気溝に加湿した模擬燃料ガス(70%H₂、15%CO₂、15%H₂O)を供給し、カソード側通気溝に酸化剤として空気を供給して、発電性能安定性を評価した。評価は約10日間行った。各燃料電池のセバレータ母材、第一層の組成、最上層の組成、初期発電電圧、10日間作動後の発電電圧、及び10日間作動後のセバレータ電極接触面の耐腐食状況を表1に併せて示す。

【0035】

【表1】

| 燃料電池 | セバレータ母材 | 第一層 | 最上層 | 初期 発電電圧 (V) | 10日後の 発電電圧 (V) | 電極接触面の 耐腐食状況 |
|------|---------------|-----|-----|-------------------|----------------------|-----------------|
| 1a | ステンレス(SUS304) | Ni | Au | 0.80 | 0.78 | 腐食なし |
| 1b | アルミニウム | Ni | Au | 0.82 | 0.80 | 腐食なし |
| 1a' | ステンレス(SUS304) | なし | Au | 0.80 | 0.65 | 腐食あり |
| 1b' | ステンレス(SUS304) | Ni | なし | 0.49 | 0.46 | 腐食なし |
| 1c' | アルミニウム | なし | Au | 0.82 | 0.53 | 腐食あり |
| 1d' | アルミニウム | Ni | なし | 0.52 | 0.49 | 腐食なし |
| 1e' | 黒鉛 | — | — | 0.85 | 0.83 | — |

【0036】表1より、貴金属の最上層のみからなる導電性被膜を形成したセバレータには腐食がみられ(燃料電池1a'及び1c')、貴金属の最上層を有さないセバレータを用いた燃料電池1b'及び1d'は発電性能が劣るのに対して、2層からなる導電性積層被膜を有する本発明の金属セバレータは良好な耐食性を示し、該セバレータを用いた燃料電池1a及び1bは、従来の黒鉛セバレータを用いた燃料電池1e'と同等の優れた発電性能を有することがわかる。

【0037】実施例2

純度99.6%のアルミニウム金属板(1mm×150mm×150mm)に、プレス加工により深さ1.0mm及び幅3.0mmの反応ガス通気溝を形成した。これをシュウ酸水溶液中で陽極酸化し、次いで沸騰水中に30分間浸漬し、乾燥して母材表面に通気溝保護膜として膜厚12μmのアルマイト被膜を形成した。次にセバレータの電極接触面の平坦度を向上させるために、電極接触面をラッピング研磨し、洗浄した。この工程により電極接触面上に形成されたアルマイト被膜は除去された。続いて、上記燃料電池1aに用いたセバレータの場合と同様の方法により、電極接触面の

みにNiの第一層及びAuの最上層からなる導電性積層被膜を形成し、本発明のセパレータを作製した。得られた本発明のセパレータを用いて、上記実施例1と同様にして燃料電池2aを作製した。また、アルマイト被膜を形成しないこと以外は燃料電池2aと同様の方法により燃料電池2bを作製した。更に、Niの第一層を形成しないこと以外は燃料電池2aと同様の方法により、比較用の燃料電池2a'を作製した。

*

| 燃料電池 | 第一層 | 最上層 | 通気溝保護膜 | 初期 発電電圧 (V) | 10日後の 発電電圧 (V) | 耐腐食状況 |
|------|-----|-----|--------|-------------------|----------------------|------------|
| 2a | Ni | Au | アルマイト | 0.84 | 0.82 | 腐食なし |
| 2b | Ni | Au | なし | 0.82 | 0.71 | ガス通気溝に腐食あり |
| 2a' | なし | Au | アルマイト | 0.81 | 0.67 | 電極接触面に腐食あり |

【0040】表2より、本発明においてセパレータ母材としてアルミニウム金属板を用いた場合には、反応ガス通気溝の表面にはアルマイト被膜を形成するのが非常に好ましいことがわかる。

【0041】実施例3

第一層の組成を表3に示すように変え、反応ガス通気溝に通気溝保護膜としてNi膜を形成したこと以外は上記燃料電池1bの場合と同様に、本発明のセパレータを含む燃料電池3a～3oをそれぞれ作製した。但し、Ti（燃料電池※

*【0038】得られた燃料電池2a、2b及び2a'の発電性能安定性を上記実施例1と同様に評価した。各燃料電池の第一層の組成、最上層の組成、通気溝保護膜の組成、初期発電電圧、10日間作動後の発電電圧、及び10日間作動後のセパレータの耐腐食状況を表2に併せて示す。

【0039】

【表2】

※3f）、SiC（燃料電池3n）、ITO（燃料電池3m）及び緻密カーボン（燃料電池3o）の第一層は気相法にて作製した。得られた燃料電池3a～3oの発電性能安定性を上記実施例1と同様に評価した。各燃料電池の第一層の組成、最上層の組成、通気溝保護膜の組成、初期発電電圧、10日間作動後の発電電圧、及び10日間作動後のセパレータの耐腐食状況を表3に併せて示す。

【0042】

【表3】

| 燃料電池 | 第一層 | 最上層 | 通気溝保護膜 | 初期 発電電圧 (V) | 10日後の 発電電圧 (V) | 耐腐食状況 |
|------|--------|-----|--------|-------------------|----------------------|-------|
| 3a | Ni | Au | Ni | 0.81 | 0.80 | 腐食なし |
| 3b | Cr | Au | Ni | 0.82 | 0.80 | 腐食なし |
| 3c | Zr | Au | Ni | 0.81 | 0.78 | 腐食なし |
| 3d | Pd | Au | Ni | 0.82 | 0.80 | 腐食なし |
| 3e | B | Au | Ni | 0.83 | 0.77 | 腐食なし |
| 3f | Ti | Au | Ni | 0.81 | 0.78 | 腐食なし |
| 3g | Ru | Au | Ni | 0.78 | 0.77 | 腐食なし |
| 3h | Sn | Au | Ni | 0.80 | 0.78 | 腐食なし |
| 3i | Ag | Au | Ni | 0.81 | 0.76 | 腐食なし |
| 3j | Ni-P | Au | Ni | 0.80 | 0.78 | 腐食なし |
| 3k | Ni-B | Au | Ni | 0.81 | 0.79 | 腐食なし |
| 3l | Ni-Sn | Au | Ni | 0.81 | 0.79 | 腐食なし |
| 3m | ITO | Au | Ni | 0.79 | 0.75 | 腐食なし |
| 3n | SiC | Au | Ni | 0.81 | 0.76 | 腐食なし |
| 3o | 緻密カーボン | Au | Ni | 0.84 | 0.83 | 腐食なし |

【0043】表3より、前述した好ましい第一層を有する本発明のセパレータは、いずれも優れた耐食性を示し、該セパレータを用いた燃料電池3a～3oは高い発電性

能安定性を示すことがわかる。

【0044】実施例4

最上層の組成を表4に示すように変えたこと以外は上記

燃料電池1bの場合と同様に、本発明のセパレータを含む燃料電池4a~4lをそれぞれ作製した。得られた燃料電池4a~4lの発電性能安定性を上記実施例1と同様に評価した。各燃料電池の第一層の組成、最上層の組成、通気溝保護膜の組成、初期発電電圧、10日間作動後の発電電

* 圧、及び10日間作動後のセパレータの耐腐食状況を表4に併せて示す。

【0045】

【表4】

| 燃料電池 | 第一層 | 最上層 | 通気溝保護膜 | 初期 発電電圧 (V) | 10日後の 発電電圧 (V) | 耐腐食状況 |
|------|-----|--------|--------|-------------------|----------------------|-------|
| 4a | Ni | Au | Ni | 0.84 | 0.82 | 腐食なし |
| 4b | Ni | Pt | Ni | 0.81 | 0.80 | 腐食なし |
| 4c | Ni | Pd | Ni | 0.81 | 0.79 | 腐食なし |
| 4d | Ni | Ir | Ni | 0.79 | 0.77 | 腐食なし |
| 4e | Ni | Bu | Ni | 0.80 | 0.77 | 腐食なし |
| 4f | Ni | Ag | Ni | 0.82 | 0.79 | 腐食なし |
| 4g | Ni | Pt-Pd | Ni | 0.80 | 0.78 | 腐食なし |
| 4h | Ni | Au-Pd | Ni | 0.82 | 0.80 | 腐食なし |
| 4i | Ni | Pt-Ir | Ni | 0.81 | 0.77 | 腐食なし |
| 4j | Ni | Pd-Ag | Ni | 0.82 | 0.80 | 腐食なし |
| 4k | Ni | SiC | Ni | 0.78 | 0.75 | 腐食なし |
| 4l | Ni | 緻密カーボン | Ni | 0.84 | 0.82 | 腐食なし |

【0046】表4より、前述した好ましい最上層を有する本発明のセパレータは、いずれも優れた耐食性を示し、該セパレータを用いた燃料電池4a~4lは高い発電性能安定性を示すことがわかる。

【0047】実施例5

第一層及び最上層の組成を表5に示すように変えたこと以外は上記燃料電池1bの場合と同様に、本発明のセパレータを含む燃料電池5a~5gをそれぞれ作製した。得られた燃料電池5a~5gの発電性能安定性を上記実施例1と同

様に評価した。ただし、本実施例では燃料電池セルを2時間作動後1時間停止するON-OFFサイクルで駆動し、評価は約25日間行った。各燃料電池の第一層の組成、最上層の組成、初期発電電圧、25日間作動後の発電電圧、及び25日間作動後のセパレータ電極接触面の被膜状況を表5に併せて示す。

【0048】

【表5】

| 燃料電池 | 第一層 | 最上層 | 初期発電電圧 (V) | 25日後の発電電圧 (V) | 電極接触面の被膜状況 |
|------|-------|-------|---------------|------------------|------------|
| 5a | Ni-Au | Au | 0.82 | 0.80 | 層間剥離なし |
| 5b | Ni-Pt | Pt | 0.80 | 0.76 | 層間剥離なし |
| 5c | Ni-Pd | Au-Pd | 0.82 | 0.80 | 層間剥離なし |
| 5d | Ni-P | Au-P | 0.80 | 0.78 | 層間剥離なし |
| 5e | Ni | Au | 0.83 | 0.71 | 層間剥離若干あり |
| 5f | Ni | Pt | 0.81 | 0.72 | 層間剥離若干あり |
| 5g | Ni | Au-Pd | 0.81 | 0.69 | 層間剥離若干あり |

【0049】表5より、燃料電池5a~5dに用いたセパレータの導電性積層被膜においては、第一層が最上層を構成する組成を含む合金からなるために、一層優れた層間密着性（接合性）を示し、そのため燃料電池5a~5dは燃料電池5e~5gよりも更に高い発電性能安定性を示すことがわかる。

【0050】

【発明の効果】以上詳述したように、本発明の燃料電池用セパレータは金属板を基材として用いるため、従来の黒鉛セパレータに比べ非常に軽量であり、量産性が高く加工コストを低減できる。加えて本発明においては、電極又は集電体との接触面上に複数の層により構成される導電性積層被膜を形成することにより、全面に貴金属被膜を形成する方法よりも低コストで優れた耐食性を有す

13

14

るセバレータを得ることができる。本発明のセバレータを用いた燃料電池は高い発電性能安定性を有する。

【図面の簡単な説明】

【図1】 本発明の一実施例による燃料電池用セバレータを含む燃料電池の一例を示す部分概略図である。

【図2】 本発明の他の実施例による燃料電池用セバレータを示す概略図、及びその導電性積層被膜の構造を示す部分拡大図である。

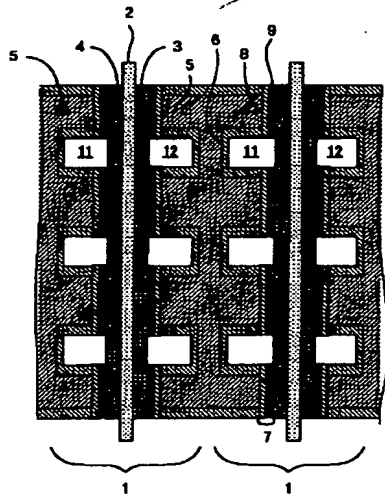
【図3】 本発明の他の実施例による燃料電池用セバレータを示す概略図、及びその導電性積層被膜の構造を示す部分拡大図である。

【符号の説明】

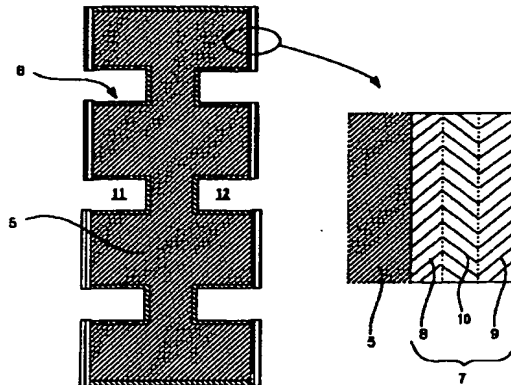
- * 1・・・単電池
2・・・固体電解質
3・・・アノード
4・・・カソード
5・・・セバレータ
6・・・通気溝保護膜
7・・・導電性積層被膜
8・・・第一層
9・・・最上層
10・・・中間層
11、12・・・反応ガス通気溝

*

【図1】



【図2】



【図3】

